

NEW PATENT APPLICATION CHECKLIST FOR MATTERS OF FORM

10 009 451

Examiner:

The items checked below have been noted in processing this application as filed.

After the typist has included these statements in the first Office action, please initial this form in the margin to the left of the appropriate paragraph. Please do NOT remove from the file jacket.

1. SPECIFICATION, JUMBO APPLICATION NOT CHECKED FOR MINOR ERRORS (If more than 20 pages of description, exclusive of claims.)

- ☐ Because of the lengthy specification in this application, it has not been checked to the extent necessary to determine the presence of all possible minor errors. Applicant's cooperation is therefore requested in promptly correcting any errors of which he may become aware in the specification or drawings.

2. RESIDENCE OMITTED (MPEP 605.02 and 603.03)

- ☐ Applicant's residence has been omitted from the papers. The city and state of his post-office address will be presumed to be the city and state of his residence. If the above is incorrect, applicant should submit a statement of his place of residence no later than at the time of payment of the issue fee.

3. PRIORITY PAPERS, ACKNOWLEDGMENT (MPEP 201.14(c))

- ☐ Receipt is acknowledged of papers submitted under 35 U.S.C. 119, which papers have been placed of record in the file.

4. PRIORITY PAPERS, ACKNOWLEDGMENT, PAPERS IN PARENT APPLICATION (MPEP 201.14(b))

- ☐ Applicant's claim for priority, based on papers filed in parent application Serial No. _____ submitted under 35 U.S.C. 119, is acknowledged.

5. PRIORITY, CLAIM FOR BUT NO PAPERS FILED (MPEP 201.14(c))

- ☐ Acknowledgment is made of applicant's claim for priority based on an application filed in _____ on _____. It is noted, however, that applicant has not filed a certified copy of said application as required by 35 U.S.C. 119.

6. PRIORITY PAPERS, MORE THAN ONE YEAR SINCE FILING IN FOREIGN COUNTRY (MPEP 201.14(c))

- ☐ Receipt is acknowledged of the filing on _____, of a certified copy of the _____ application referred to in the _____. * A claim for priority can not be based on said application, since the United States application was filed more than twelve months thereafter.

7. PRIORITY, REFERENCE IN OATH OR DECLARATION OMITTED (MPEP 201.14(c))

- ☐ Receipt is acknowledged of papers filed _____, based on an application filed in _____ on _____. Applicant has not complied with the requirements of Rule 65(a), since the _____ * does not acknowledge the filing of any foreign application. A new _____ * is required.

* INSERT EITHER "DECLARATION" OR "OATH" WHICHEVER IS APPLICABLE.

CLERK

Daniel Saffin

DATE

8 7 97

REC'D 14 JUN 2001

WIPO

PCT



EP 01/2566
4

13/9

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Aktenzeichen:

100 10 558.0

Anmeldetag:

8. März 2000

Anmelder/Inhaber:

UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH,
Leipzig/DE

Bezeichnung:

Verfahren und Vorrichtung zur schnellen und
kontinuierlichen Erfassung von Änderungen
der Konzentration von in Wasser gelöstem
Radon-Gas

IPC:

G 01 N 33/18

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der
ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 9. April 2001
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident
Im Auftrag



PATENTANWÄLTE
GULDE HENGELHAUPT ZIEBIG

European Patent and Trademark Attorneys
Patente Marken Design Lizenzen

GULDE HENGELHAUPT ZIEBIG Schützenstraße 15-17, 10117 Berlin

Klaus W. Gulde, Dipl.-Chem.
Jürgen D. Hengelhaupt, Dipl.-Ing.*
Dr. Marlene K. Ziebig, Dipl.-Chem.**
Wilfried H. Goesch, Dipl.-Ing.*
Schützenstraße 15-17
D-10117 Berlin
Tel: 030/264 13 30
Fax: 030/264 18 38
e-mail: PatentAttorneys.GHZ@t-online.de
Internet: <http://www.berlin-patent.net>

Unser Zeich./our reference
P85900DE-HH
Datum/date
Berlin, 08.03.2000

UFZ-Umweltforschungszentrum
Leipzig-Halle GmbH
Permoserstraße 15

D - 04318 Leipzig

Verfahren und Vorrichtung zur schnellen und
kontinuierlichen Erfassung von Änderungen der
Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas

5

Zusammenfassung

10

Die Erfindung beschreibt ein Verfahren und eine Vorrichtung zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas durch Überführung in ein Meßgas (Rn-222), welche für vielfältige Überwachungs-, Kontroll- und Regelaufgaben, herangezogen werden kann.

15

Die Erfindung basiert darauf, daß eine für das radioaktive Edelgas Radon durchlässige, aber für Wasser weitgehend undurchlässige Membran auf der einen Seite vom radonhaltigen Wasser und auf der anderen Seite von einem Trägergas mit jeweils optimierten Strömungsgeschwindigkeiten parallel oder im Gegenstrom umspült wird.

20

Bei Gewährleistung stabiler Randbedingungen ist die Konzentration von Radon im Meßgas direkt proportional der Konzentration von Radon im Wasser

Vergleich zwischen Kreislauf und Durchfluß des Meßgases
Durchfluß von ca. 12 Liter Leitungswasser pro Minute durch die Sonde
(Spezifische Aktivität: ca. 1 Bq Radon pro Liter Wasser)

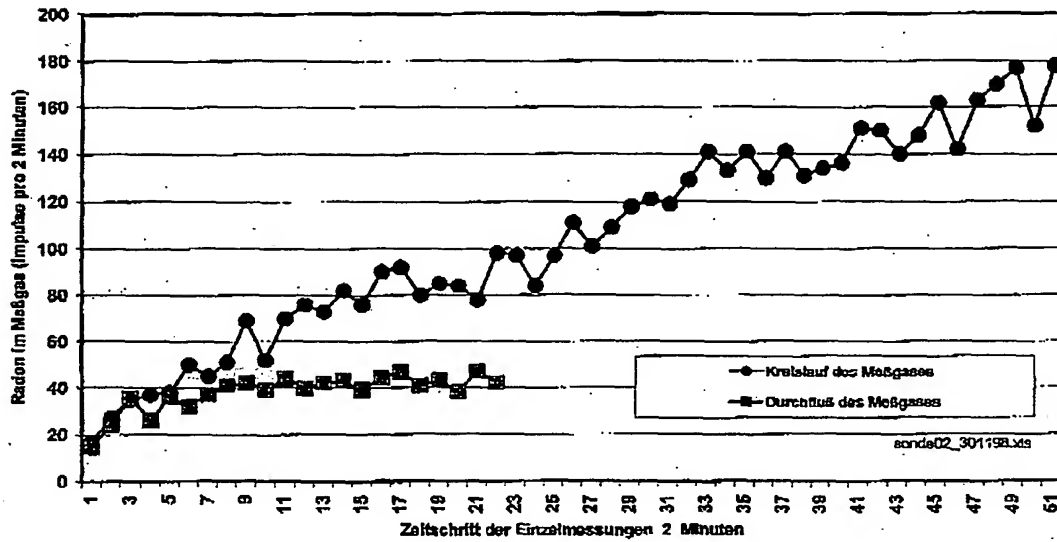


Fig. 1

5

10

Verfahren und Vorrichtung zur schnellen und
kontinuierlichen Erfassung von Änderungen der Konzentration
von in Wasser gelöstem Radon-Gas

15

Beschreibung

20

25

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas durch Überführung in ein Meßgas (Rn-222), welches für vielfältige Überwachungs-, Kontroll- und Regelaufgaben, herangezogen werden kann.

30

Sie betrifft auch eine spezielle Vorrichtung zur schnellen und kontinuierlichen Überführung von im Wasser gelöstem Radon-Gas (Rn-22) in ein Meßgas und dessen Weiterleitung in extra hierfür angefertigte oder handelsübliche Detektionssysteme für Radon-Gas (Rn-222).

35

Das natürliche radioaktive Edelgas Radon (Rn-222) entsteht überall und ständig neu, wenn das in der Zerfallsreihe von Uran-238 gebildete Radium-226 zerfällt. Da alle geologischen Materialien mehr oder weniger Uran enthalten, ist auch Radon allgegenwärtig und findet sich in

5 unterschiedlichen Konzentrationen auch im Wasser. Für die
meßtechnische Erfassung der Konzentration von Radon im
Wasser existieren zahlreiche vom Wirkprinzip her
unterschiedliche Methoden, welche im Feld aber auch im
Labor eingesetzt werden können.

10

Die kontinuierliche Erfassung auftretender
Konzentrationsänderungen von Radon im Wasser ist für
zahlreiche mögliche Anwendungen von großem Interesse. Die
mit verschiedenen Verfahren bisher realisierten zeitlichen
15 Auflösungen erweisen sich allerdings in vielen Fällen als
nicht ausreichend bzw. als ungeeignet, so daß die
gewünschten Informationen nicht oder nur unzureichend zur
Verfügung gestellt werden konnten.

20

Als Beispiele für den möglichen Einsatz sollen hier
stellvertretend die Optimierung der Probennahme von
Grundwassermeßstellen, die Überwachung der Radonführung im
Quellwasser als einer von mehreren Einträgen zur
Erdbebenforschung und weiterhin die Kontrolle
25 balneologischer Anwendungen von Radon im Wasser
(Qualitätssicherung) genannt werden.

30

Bekannt ist die kontinuierliche Messung der Konzentration
von Radon ($Rn-222$) in Wasser durch Überführung des Radons
aus dem Wasser durch eine wasserdichte, gasdurchlässige
Membran, z.B. in Form eines Schlauches, in einen
Gaskreislauf (z.B. Luft), der durch ein Radonmeßgerät
geleitet wird, in dem die Radonkonzentration in dem
Gaskreislauf durch Messung der Aktivität des Radons und
35 seiner Folgeprodukte bestimmt wird. (H. Surbeck, A Radon-in
Water Monitor Based on Fast Gas Transfer Membranes, Int.
Conf. Technologically Enhanced Natural Radioactivity (TENR)
Caused by Non-uranium Mining, October 16-19, 1996, Szczyrk,
Poland). In dem geschlossenen Gaskreislauf baut sich,

5 zeitlich entsprechend den Halbwertszeiten der Folgeprodukte verzögert, eine der Radonkonzentration im Wasser proportionale Aktivitätskonzentration auf.

Der Mangel dieser Vorrichtung ist, daß infolge dieser zeitlichen Verzögerung des Aktivitätsaufbaus eine
10 kontinuierliche Bestimmung der Radonkonzentration im Wasser, insbesondere eine Konzentrationsänderung, nur mit einer zeitlichen Auflösung größer 15 min möglich ist.

Weiterhin beschreibt die WO 97/43637 ein Verfahren und
15 Vorrichtungen zur Charakterisierung von Grundwassermeßstellen durch Unterscheidung von Grundwasser und Standwasser und dient beispielsweise zur Bestimmung der für repräsentative Beschaffenheitsuntersuchungen optimalen Abpumpzeiten von Grundwassermeßstellen sowie der Erkennung
20 und Lokalisierung von Defekten an Grundwassermeßstellen. Die Erfindung basiert auf der Messung der Radonaktivitätskonzentration bzw. der Gesamtaktivitätskonzentration der Grundwasserproben.

25 Die Messung der Konzentrationen gestattet die Bestimmung des Verhältnisses von Grundwasser zu Standwasser in einer Grundwassermeßstelle.

Es werden eine neuartige Durchflußmeßzelle sowie eine Bohrlochsonde beschrieben.

30 Bei allen bekannten Verfahren und Vorrichtungen wird das Meßgas im Kreislauf durch den Diffusionsschlauch und die Meßkammer umgewälzt. Dadurch baut sich entsprechend der Halbwertszeit des Radon-222 von 3,8 Tagen langsam ein
35 Konzentrationsgleichgewicht zwischen dem umgebenden Wasser und dem Meßgas auf. Die relativ lange Halbwertszeit verhindert die Registrierung schneller (im Minutenbereich) Änderungen der Radonkonzentration im Wasser.

5 Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und
eine Vorrichtung zur schnellen und kontinuierlichen
Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser
gelöstem Radon-Gas anzugeben, die eine wirtschaftliche,
10 technisch wenig aufwendige Lösung darstellen und in vielen
Anwendungsbereichen, sei es mobil oder stationär, die
Erfassung schneller Änderungen der Konzentration von Radon
im Wasser mit möglichst hoher zeitlicher Auflösung
gestatten.

15 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch die
Merkmale im kennzeichnenden Teil der Ansprüche 1 und 7.

Zweckmäßige Ausgestaltungen der Erfindung sind in
Unteransprüchen beschrieben.

20 Ein besonderer Vorteil der Erfindung besteht darin, daß die
bei allen bekannte Lösungen vorhandene enorme zeitliche
Verzögerung bei der Erfassung der Konzentrationsänderungen
des in Wasser gelösten Radon-Gases dadurch verhindert bzw.
25 minimiert wird, daß der Gaskreislauf geöffnet wird.

Im Unterschied zu den bekannten Verfahren und
Vorrichtungen, bei denen eine definierte Wassermenge
quasistationär einen Diffusionsschlauch umgibt, wird nun
30 erfindungsgemäß ständig radonfreies Meßgas auf der einen
Seite des Diffusionsschlauches zugeführt. Das Meßgas nimmt
das radioaktive Edelgas Radon, welches aus dem parallel
oder im Gegenstrom zum Meßgas auf der anderen Seite des
Diffusionsschlauches mit einer optimierten
35 Strömungsgeschwindigkeit ständig neu zugeführten Wasser
durch den Diffusionsschlauch hindurch diffundiert, auf und
leitet es zu einer geeigneten Meßeinrichtung.

5 Bei Gewährleistung stabiler Randbedingungen ist die
Konzentration von Radon im Meßgas direkt proportional der
Konzentration von Radon im Wasser. Bei Verwendung von
besonders geeigneten Meßeinrichtungen lassen sich auch bei
geringen Aktivitätskonzentrationen von wenigen Bequerel
10 Radon im Liter Wasser zeitliche Auflösungen im Bereich von
ca. 2 Minuten und darunter erzielen.

Die Dimensionierung und die geometrische Form der Membran
und die für das Wasser und das Trägergas erforderlichen
15 Strömungsgeschwindigkeiten können bei Bedarf entsprechend
den konkret vorliegenden Aufgabenstellungen, dem zu
überwachenden Konzentrationsbereich und der gewünschten
zeitlichen Auflösung optimiert werden.

20 Dadurch, daß ständig neues, radonfreies Gas, z.B. Luft,
durch den vom Wasser umgebenen Gasraum (z.B.
Diffusionsschlauch) in das Radonmeßgerät gepumpt, dort
kontinuierliche gemessen, und danach an die Umgebung
abgegeben wird, wird vermieden, daß sich in dem Meßgas
25 Folgenuklide des Radon über längere Zeit aufbauen können
und damit den Meßeffect zeitlich verzögern.

Erstmals wird hierdurch auch möglich, die Abnahme von
Radonkonzentration direkt zu erfassen.

30 Die Erfindung soll nachstehend anhand von
Ausführungsbeispielen näher erläutert werden.
Es zeigen:

35 Fig. 1 Ein Diagramm zum Vergleich zwischen
Kreislauf und Durchfluß des Meßgases

5 Wird wie in Fig. Dargestellt ein Meßgas im Kreislauf
gefördert (Punkte), wie es, bei den bisher angewendeten
Meßverfahren der Fall gewesen ist, so wird die Meßzeile
erheblich kontaminiert und ist nicht mehr in der Lage,
10 geringe Aktivitätsdifferenzen mit der gewünschten
Zeitauflösung erfassen zu können. Der Gleichgewichtszustand
wird erst nach ca. 2 Stunden erreicht.

15 Wird ständig neues Meßgas im Durchflußmodus herangeführt
(Quadrate), so baut sich nach wenigen Minuten ein
konstantes Meßsignal auf, welches der spezifischen
Aktivität von Radon im Wasser weitgehend proportional ist,
auf kurzfristige Aktivitätsänderungen schnell reagiert und
nur geringfügiger Korrekturen bedarf.

20

25 Die Erfindung ist nicht beschränkt auf die hier be-
schriebenen Ausführungsbeispiele. Vielmehr ist es möglich,
durch geeignete Kombination der genannten Mittel und
Merkmale weitere Ausführungsvarianten zu realisieren, ohne
den Rahmen der Erfindung zu verlassen.

Patentansprüche

5

10

15

20

25

30

35

1. Verfahren zur kontinuierlichen und insbesondere schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration von in Wasser gelöstem Radon-Gas unter Verwendung wasserdichter, gasdurchlässiger Membranen, dadurch gekennzeichnet, daß
ohne Realisierung eines Kreislaufes ständig neues, radonfreies Gas durch einen vom Wasser umgebenen, durch die wasserdichte, gasdurchlässige Membran abgetrennten Gasraum in ein Radonmeßgerät gepumpt und dort kontinuierlich gemessen wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
das radonfreie Gas Luft ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
das Gas nach Verlassen des Radonmeßgerätes an die Umgebung abgegeben wird.
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
das Wasser und das Meßgas im Gegenstrom entlang der Membran geführt werden.

- 5 5. Verfahren nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet, daß
das Wasser und das Meßgas parallel zu der Membran
geführt werden.
- 10 6. Verfahren nach einem der voranstehenden Ansprüche 1
bis 5,
dadurch gekennzeichnet, daß
der Gasraum ein Diffusionsschlauch ist.
- 15 7. Vorrichtung zur kontinuierlichen und insbesondere
schnellen Erfassung von Änderungen der Konzentration
von in Wasser gelöstem Radon-Gas,
dadurch gekennzeichnet, daß
- 20 ein Gasraum einen Eingang und einen Ausgang aufweist
und im strömenden Wasser angeordnet ist, wobei der
Eingang des Gasraumes mit einer Gasquelle und der
Ausgang des Gasraumes mit dem Eingang eines
Radonmeßgerätes verbunden ist.
- 25 8. Vorrichtung nach Anspruch 7,
dadurch gekennzeichnet, daß
der Ausgang des Radonmeßgerätes in die Umgebungsluft
mündet.
- 30 9. Vorrichtung nach Anspruch 7
dadurch gekennzeichnet, daß
der Gasraum ein Diffusionsschlauch ist.
- 35

Vergleich zwischen Kreislauf und Durchfluß des Meßgases
Durchfluß von ca. 12 Liter Leitungswasser pro Minute durch die Sonde
(Spezifische Aktivität: ca. 1 Bq Radon pro Liter Wasser)

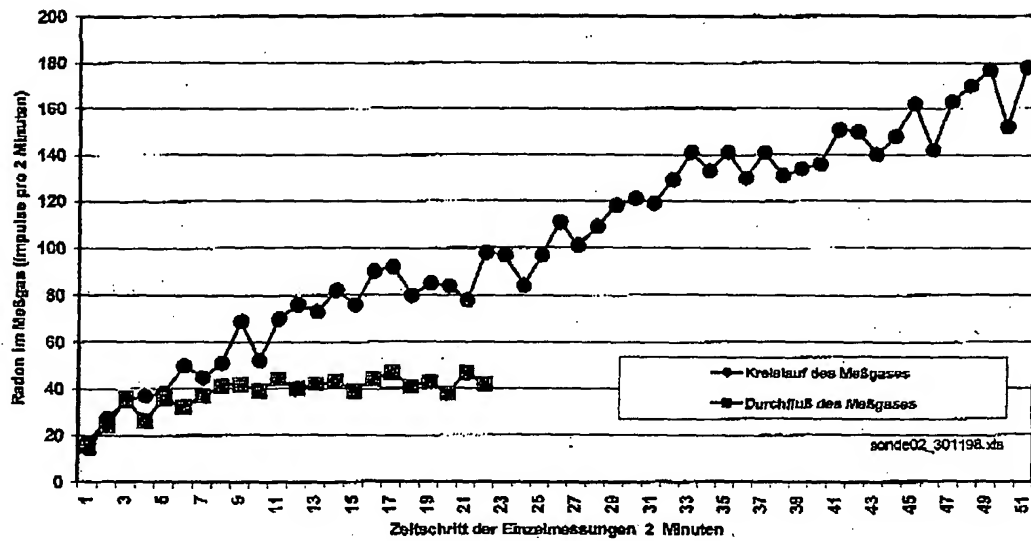


Fig. 1

